第 32 卷 第 3 期　　原 子 核 物 理 评 论　　Vol. 32, No. 3
2023 年 11 月　　Nuclear Physics Review　　Nov. , 2023

文章编号：1007-4627(2023) 03-0001-06

定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器性能研究

魏秀琳[1]，杨泽楷[1]，周小朋[1]，孙保华[1]

(1. 北京航空航天大学物理学院，北京 100191)

摘要：本工作基于国产 $\phi2''\times2''$ $LaBr_3$(Ce) 晶体耦合滨松 R13089 型快时间响应光电倍增管定制了 $LaBr_3$(Ce) 探测器。研究结果表明，定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器对 662 keV γ 射线的能量分辨率和全能峰探测效率分别为 3.6% 和 0.09%，对 ^{60}Co 中 1173-1332 keV 级联 γ 射线的时间分辨率为 270 (22) ps。该探测器的本征辐射计数率为 4824 (69) Counts/h/cm^3。本文同时展示了圣戈班 B380 和 B390 探测器的测试结果作为参考。

关键词：$LaBr_3$(Ce) 探测器，能量分辨率，探测效率，时间分辨率，本征辐射

中图分类号：TL812+.1　　**文献标志码：**A　　**DOI：**10.11804/NuclPhysRev.32.01.01

引言

溴化澜 ($LaBr_3$(Ce)) 作为一种新型的无机闪烁体，是一种具有六边形 (UCL3 型) 结构的无机晶体，其特征是具有 P63/m 空间群，这种晶体结构有利于高效的能量转换和光发射[1]，从而提高了其能量分辨率和时间分辨率。其光产额通常为 6×10^4 photon/MeV，相当于标准 NaI(Tl) 闪烁体的 160%[2]。在 662 keV(^{137}Cs) 能量下，$LaBr_3$(Ce) 探测器的能量分辨率约为 3%，优于 NaI(Tl)、BaF_2 等同类型闪烁体探测器；光输出衰减时间约为 16 ns，发射光谱峰值约为 380 nm，使其在时间测量上具有优势[3]。由于其卓越的性能，$LaBr_3$(Ce) 闪烁体在辐射成像[4]、探测效率[5-7]、能谱分析[8] 以及本征辐射[9] 等方面得到了深入研究。高能量分辨、快衰减时间、宽发射光谱以及稳定的温度响应等优势使得 $LaBr_3$(Ce) 闪烁体广泛应用于空间物理学[10]、环境监测[11]、医学成像[12-13]、核素鉴别[14] 以及地质勘探与核测井研究[15-16] 等领域。这些优势也使得其在分辨短寿命激发态，准确的原子核寿命测量及原子核结构的研究[1,17-18] 等方面有着非常重要的应用前景。

然而，$LaBr_3$(Ce) 探测器具有相对较高的本征本底辐射[9]，通常比 NaI(Tl) 探测器至少高出 1 到 2 个数量级[3]。其本底辐射主要有以下两个来源：天然存在的放射性同位素 ^{138}La 的自辐射和 ^{227}Ac 杂质及其五个短寿命子核的衰变。这些本底辐射会降低 γ 射线的探测灵敏度，限制其在低本底或极低触发率实验中的应用，例如空间 γ 射线探测[10,19]、稀有事件的搜寻[20-21] 以及高性能 γ 射线探测阵列的构建[22-24]。

本文旨在对为实现较高时间分辨而定制的 $LaBr_3$(Ce) 探测器进行综合研究，重点关注能量分辨率、探测效率、时间分辨以及本征辐射强度，并以圣戈班的同类探测器为参考。

1　实验测量

定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器是由北京玻璃研究院生产的 $\phi2''\times2''$ $LaBr_3$(Ce) 晶体与 R13089 型光电倍增管 (PMT) 耦合组成。其光电倍增管采用滨松推荐的分压电路并设置阳极接地，优化光阴极和栅极的分压比，并进行适当的阻容匹配调整，旨在保持较高能量分辨的同时最大限度地提高时间分辨能力。作为参考，我们同时对圣戈班 B380 和 B390 进行了测量。圣戈班 B380 是由 $\phi3''\times3''$ 的晶体与 R10233-100 型光电倍增管耦合组成。圣戈班 B390 由 $\phi3''\times4''$ 的晶体与 R6233-100 型光电倍增管耦合组成。以上三种型号 $LaBr_3$(Ce) 探测器在晶体尺寸和光电倍增管方面均存在差异。

表 1: 滨松光电倍增管的特性[25]

PMT	R13089	R10233-100	R6233-100
上升时间 (ns)	2	9.5	10
渡越时间 (ns)	20	52	52
渡越时间涨落 (ns)	0.23	8.5	9.4
典型增益 ($\times10^6$)	3.2	2.3	2.3
直径 (in.)	2	3.5	3
量子效率 (%)	25	35	35

表 1 中列出了三种型号 $LaBr_3$(Ce) 探测器所使用光电倍增管 (PMT) 的特性。其中，R10233-100 与 R6233-100 具有高光电转换率，有利于提升能量分辨率；R13089 的

收稿日期：2023-11-17；　修改日期：2023-11-17
基金项目：国家自然科学基金资助项目 (11922501)；
作者简介：魏秀琳 (1995–)，女，河北石家庄人，博士研究生，从事粒子物理与原子核物理研究；E-mail: xlnwei@buaa.edu.cn
通信作者：E-mail: bhsun@buaa.edu.cn

渡越时间涨落较小，因此具有更快的时间响应。

1.1 能量分辨率

综合考虑晶体的光输出和光电倍增管的非线性效应等诸多物理因素后，分别选取 700V 和-1200V 的工作电压对圣戈班和定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器进行能谱测量，以研究 $LaBr_3$(Ce) 探测器对不同能量 γ 射线的能量分辨率。实验中分别使用了 ^{137}Cs、^{60}Co、^{22}Na、^{152}Eu 和 ^{133}Ba 标准 γ 源，这些放射源涵盖了 31-1408 keV 的 γ 射线和一些级联辐射的加和峰。能量分辨率 η 随 γ 射线能量 E_γ 的变化近似满足式 (1) 函数关系[26]:

$$\ln(\eta) = -\frac{1}{2}\ln(E_\gamma) + C \tag{1}$$

图 1展示了三种型号的 $LaBr_3$(Ce) 探测器的能量分辨率。定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器能量分辨率 ln(η) 的变化趋势与圣戈班探测器相一致。对于能量为 662 keV 的 γ 射线，该探测器的能量分辨率为 3.6%，而圣戈班的能量分辨率分别为 2.8% (B380) 和 2.4% (B390)。本探测器对于 1173 keV γ 射线的能量分辨率为 2.6%，圣戈班探测器对该 γ 射线的分辨率分别为 2.2% (B380) 和 1.8% (B390)。探测器中光电倍增管的增益和光电转换率均会影响能量分辨。

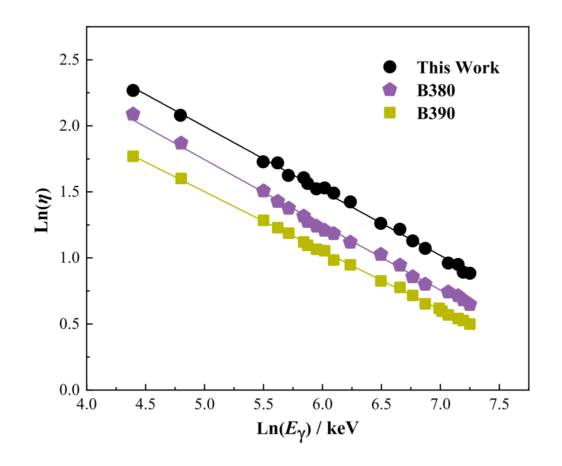


图 1: 各型号 $LaBr_3$(Ce) 探测器的能量分辨率 $ln(\eta)$ 与射线能量 $ln(E_\gamma)$ 之间的关系。使用式 (1) 对各组数据进行拟合。

1.2 探测效率曲线

探测效率是评估探测器性能的重要指标之一。我们使用标准 γ 源对定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器进行了全能峰探测效率的测量。放射源距离探测器表面中心 17 cm。全能峰效率 ε 为全能峰峰面积内计数与同一时间内放射源发射的 γ 光子数之比，其计算公式如下:

$$\varepsilon = \frac{N}{AB_\gamma t} \times 100\% \tag{2}$$

其中 N 为全能峰的净计数，A 为放射源的活度，B_γ 为 γ 射线的分支比，t 为测量时间。

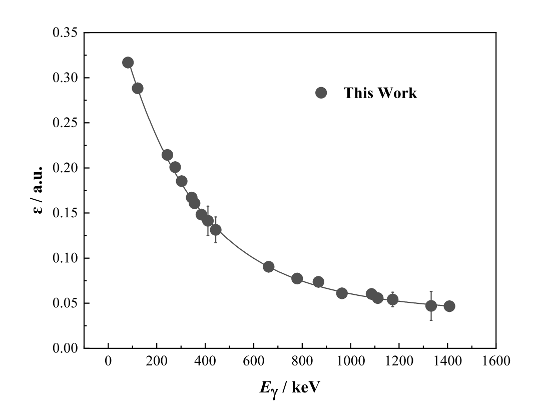


图 2: 定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器的全能峰效率曲线。

定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器全能峰探测效率曲线的测量结果如图 2 所示。其中，通过多项式描述 ε- E_γ 曲线[7]，即 $ln\varepsilon = a_0 + a_1 lnE_\gamma + a_2(lnE_\gamma)^2 + a_3(lnE_\gamma)^3$。对于不同能量的 γ 射线，随射线能量增加，全能峰探测效率逐渐降低。该探测器对 121 keV γ 射线的全能峰探测效率为 0.29%，比 661 keV 射线的 0.09% 高 2.2 倍。这是因为能量越高的 γ 射线与晶体的反应概率越低，光电效应的截面越小。

1.3 时间分辨率

采用符合测量法，对三种型号的 $LaBr_3$(Ce) 探测器同时开展时间分辨研究。三个探测器分别位于等边三角形的三个顶点，相互之间夹角为 120°。放射源 ^{60}Co 放置于等边三角形的几何中心，与每个探测器相距 7 cm，如图 3 所示。探测器信号通过一分二后分别进入主放大器 (N968) 和恒比定时器 (584)。经放大器放大后的信号由模数转换器 (V785N) 记录幅度信息，经恒比定时器甄别后得到各路信号的时间信息并由时数转换器 (V1290A) 进行记录。同时对定时甄别后的各路信号进行逻辑操作，任意两路存在符合即可形成触发信号，用于幅度和时间信息的记录。

实验测量所得的为整个测量系统的时间分辨$\Delta T_t = \sqrt{t_s^2 + t_{x1}^2 + t_{x2}^2}$，其主要由两探测器本征时间分辨 t_{x1}、t_{x2} 和甄别器以及电子学线路的时间分辨 t_s 三部分组成[27]。为获得探测器的本征时间分辨 t_x，使用精密脉冲发生器模拟并代替 $LaBr_3$(Ce) 探测器的输出信号重复时间分辨测量实验，测得甄别器和电子学线路的时间分辨 t_s，并在后续计算中进行相应减除。

图 4 展示了圣戈班 B390 与定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器的二维关联能谱图。在两个探测器中分别选取 1173 keV 和 1332 keV 的 γ 射线所对应的全能峰事件。

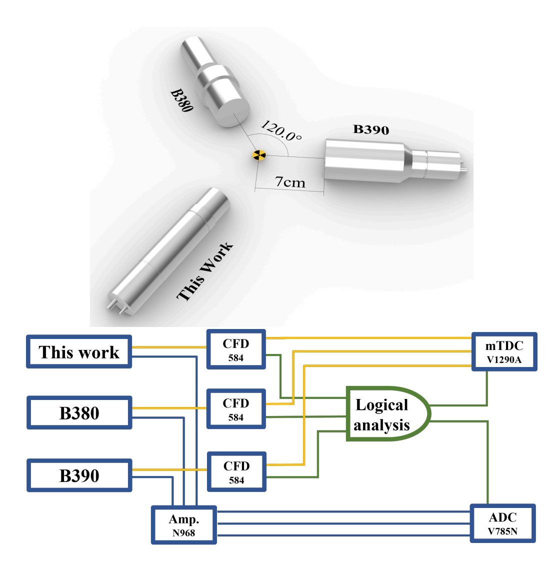


图 3: $LaBr_3(Ce)$ 探测器时间分辨测量原理图。

如图 4 中红色虚线所示，这些级联事件被筛选出用于进行时间分辨研究。图 5 展示了根据上述方式所筛选的符合事件的时间差分布，其半高宽 (FWHM) 反映了整个测量系统的时间分辨ΔT_t。在实验中，三种型号的 $LaBr_3(Ce)$ 探测器两两组合得到三组时间分辨ΔT_{ti}(i=1,2,3)。根据时间分辨原理的计算公式$\Delta T_t=\sqrt{t_s^2+t_{x1}^2+t_{x2}^2}$，通过求解方程组获得每个探测器的本征时间分辨 t_x。经测量电子学系统的最佳时间分辨 t_s 约为 60 ps。

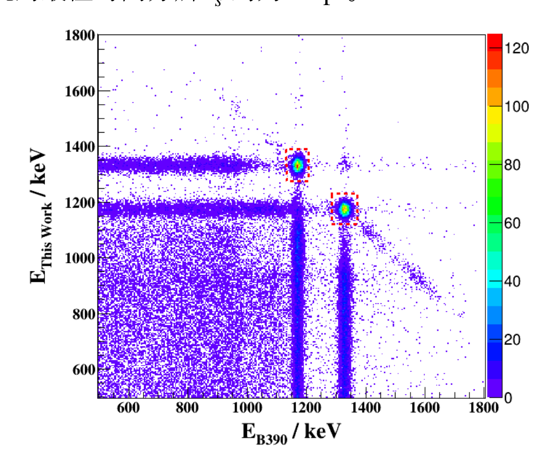


图 4: 圣戈班 B390 与定制 $LaBr_3(Ce)$ 快时间探测器的关联能谱图。坐标轴表示 γ 射线的能量，颜色则对应计数。

测量结果表明，定制 $LaBr_3(Ce)$ 快时间探测器的时间分辨性能更为优越，其时间分辨为 270(22) ps；圣戈班 B380 和 B390 两种型号的时间分辨分别为 348(17) 和 425(14) ps。相对于圣戈班 B380 和 B390，本探测器使用的光电倍增管 (R13089) 具有更快的上升时间和小的电子渡越时间涨落[25]，使其对应脉冲信号的上升时间更快。另一方面，在小体积的 $LaBr_3(Ce)$ 晶体中，光信号传播路径更短，导致光传输时间减少，从而提高时间性能。

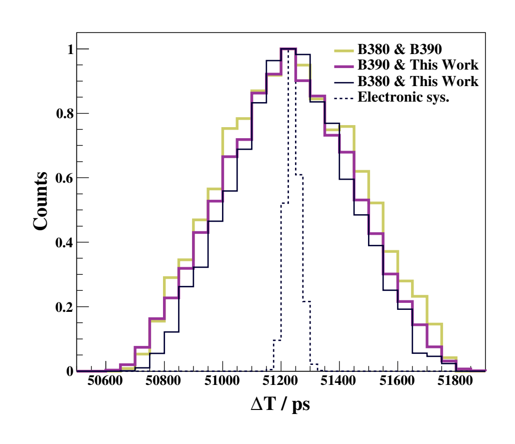


图 5: 两条级联 γ 射线在不同 $LaBr_3(Ce)$ 探测器组合中的时间差，以及电子学系统的时间分辨。其纵坐标表示归一化计数，时间差中心值表示测量系统的延迟时间。

综上所述，优良时间性能的光电倍增管和更小的晶体尺寸共同提升了定制 $LaBr_3(Ce)$ 快时间探测器的时间分辨性能，使其在时间测量方面具有更高的精确度。

1.4　本征辐射

由于 ^{138}La 的自辐射和晶体中杂质 ^{227}Ac 及其子核衰变所引起的信号，$LaBr_3(Ce)$ 探测器呈现出相对较高的本征本底辐射。通过自触发的方式在低本底室中分别测量了三个探测器的本征辐射能谱，由铅构成的低本底室可以屏蔽大部分环境中的天然放射性核素对能谱测量的影响。

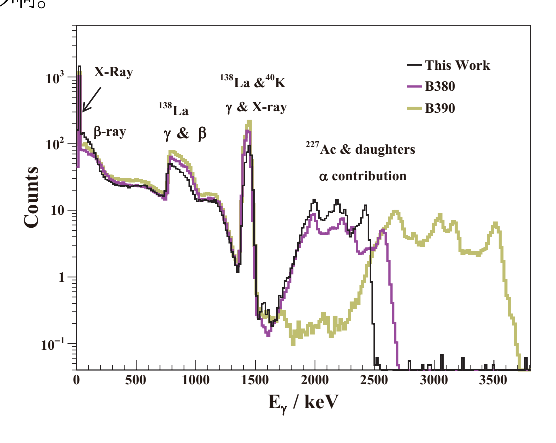


图 6: 各型号 $LaBr_3(Ce)$ 探测器的本征辐射能谱，纵坐标表示每小时单位体积内的计数。

图 6 中展示了三种型号的 $LaBr_3(Ce)$ 探测器的本征辐射能谱。能谱最左侧为 ^{138}La 电子俘获 (EC) 衰变过程中放出的特征 X 射线与 5.6 keV 俄歇电子的加和响应；紧随其后的为 ^{138}La 发生 β^- 衰变产生的 β 连续射线，以及其与级联 788.7 keV 的 γ 射线同时在探测器中发生能量沉积导致 788.7 keV 峰的右侧向后延伸形成的连续谱。^{138}La 电子俘获 (EC) 产生的特征 X 射线与 1435.8 keV 的

γ 射线在 1461 keV 附近形成双峰结构[28]；^{227}Ac 及其子核发射的 α 射线在能谱图的 1.6~3.8 MeV 范围内形成多峰结构[9]。圣戈班 B390 型探测器晶体中锶 (Sr) 的掺杂降低了 α 射线在晶体中的淬熄因子，即提高了重带电离子的发光效率，使该型号探测器中 α 射线的峰位相较于 B380 型和定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器向高能区偏移，从而增强了对环境中 γ 射线的区分能力。未来可将类似改进方法应用于国产晶体探测器，进一步提升其性能表现。

通过对能谱进行分析，我们分别得到了以 ^{138}La 和 ^{227}Ac 衰变为主的各组分在相对应能量区间的计数率，如表 2 所示。在圣戈班 B380 和 B390 探测器中，^{138}La 和 ^{227}Ac 的计数率与先前文献中报道的测量结果相一致[9]。在 0.02-1.6 MeV 能量范围内，定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器对于 ^{138}La 的计数率相对较低，约为圣戈班 B380 和 B390 探测器计数率的 91%。在 1.6-3.8 MeV 能量范围内，三个探测器中 ^{227}Ac 及其子核衰变过程中所发射 α 射线的计数率相接近。这表明 ^{227}Ac 作为污染物在本探测器晶体中的残余比例与圣戈班探测器相一致。总体而言，定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器的本征辐射平均计数率略低于圣戈班 B380 和 B390 探测器。

表 2: $LaBr_3$(Ce) 探测器的本征辐射强度

探测器	^{138}La 的计数率 0.02-1.6 MeV (Counts/h/cm^3)	^{227}Ac 的计数率 1.6-3.8 MeV (Counts/h/cm^3)	本底计数率 0.02-3.8 MeV (Counts/h/cm^3)
定制 $LaBr_3$(Ce)	4494(67)	330(18)	4824(69)
B380	4955(70)	320(18)	5275(73)
B390	4815(69)	339(18)	5154(71)

2 结 论

基于国产 $\phi 2'' \times 2''$ $LaBr_3$(Ce) 晶体与滨松 R13089 型光电倍增管相耦合定制了 $LaBr_3$(Ce) 探测器，并对其能量分辨率、探测效率、时间分辨以及本征辐射强度分别进行测量。研究结果表明，定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器对 662 keV 和 1173 keV γ 射线的能量分辨率分别为 3.6% 和 2.6%，对 121 keV γ 射线的全能峰探测效率比 661 keV 射线高 2.2 倍。该探测器对于 ^{60}Co 源级联 γ 射线的时间分辨率为 270 (22) ps，R13089 型光电倍增管快的上升时间和小的电子渡跃时间涨落使得时间测量更精确。定制 $LaBr_3$(Ce) 快时间探测器的本征辐射平均计数率为 4824 (69) Counts/h/cm^3，比圣戈班探测器的平均计数率低 6%，其中 ^{138}La 的计数率约为圣戈班探测器的 91%，而 ^{227}Ac 及其子核衰变发射 α 射线的计数率在误差范围内与圣戈班探测器一致。

致 谢

感谢课题组齐浩天、李光帅和吴天宇同学对本文初稿的建议和帮助。

参考文献

[1] MSEBI L, INGEBERG V W, JONES P, et al. Nucl Instr and Meth A, 2022, 1026: 166195. https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900221010603. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nima.2021.166195.

[2] CANG J R, FANG X C, ZENG Z, et al. Phys Rev Appl, 2020, 14: 064075. https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevApplied.14.064075.

[3] [EB/OL]. https://www.crystals.saint-gobain.com/sites/hps-mac3-cma-crystals/files/2021-06/LaBr-Performance-Summary-2021.pdf.

[4] LU W, WANG L, YUAN Y, et al. Nuclear Science and Techniques, 2022, 33(8): 1. DOI: 10.1007/s41365-022-01081-3.

[5] YANG Tibo, WANG Min, DAI Guangming, et al. Nuclear Techniques, 2021,44(10):100402 (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.100402
(杨体波, 王敏, 代光明, 等. 核技术, 2021, 44(10): 100402.)

[6] CHEN Zhiqiang, CHEN Jingjing, SHU Shuangbao, et al. Nuclear Techniques, 2022,45(1):010401. (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.010401
(陈志强, 陈晶晶, 舒双宝, 等. 核技术, 2022, 45(1): 010401.)

[7] YE Erlei, NAN Hongjie, SHEN Chunxia, et al. Nuclear Techniques, 2022,45(9):090202. (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.090202
(叶二雷, 南宏杰, 沈春霞, 等. 核技术, 2022, 45(009): 045.)

[8] SHI R, TUO X G, LI H L, et al. Nuclear Science and Techniques, 2018, 29(1): 10. DOI: 10.1007/s41365-017-0340-6.

[9] CHENG H, SUN B H, ZHU L H, et al. Nuclear Science and Techniques, 2020, 31(99): 33. DOI: 10.1007/s41365-020-00812-8.

[10] CHEN Wei, GUO Jianhua, WANG Shen. Nuclear Techniques, 2018,41(2):020402. (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.020402
(陈伟, 郭建华, 汪慎. 核技术, 2018, 41(2): 020402.)

[11] HUANG P. Nuclear Science and Techniques, 2018, 29(3): 35. DOI: 10.1007/s41365-018-0375-3.

[12] DONG M H, YAO Z Y, XIAO Y S. Nuclear Science and Techniques, 2023, 34(8): 121. DOI: 10.1007/s41365-023-01273-5.

[13] LI Yan, WANG Chuan, LIU Liye, et al. Nuclear Techniques, 2022,45(7):070401. (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.070401
(李岩, 王川, 刘立业, 等. 核技术, 2022, 45(7): 070401.)

[14] LI X Z, ZHANG Q X, TAN H Y, et al. Nuclear Science and Techniques, 2022, 32(12): 143. DOI: 10.1007/s41365-021-00982-z.

[15] WAN Wenjie, ZHOU Wei, ZHOU Jianbin, et al. Nuclear Techniques, 2017,40(11):110404. (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.110404
(万文杰, 周伟, 周建斌, 等. 核技术, 2017, 40(11): 110404.)

[16] HAO Jinlong, DONG Wenming, CHEN Ning, et al. Nuclear Techniques, 2022,45(7):070402. (in Chinese) DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.070402
(郝金龙, 董文明, 陈宁, 等. 核技术, 2022, 45(7): 070402.)

[17] RéGIS J M, PASCOVICI G, JOLIE J, et al. Nucl Instr and Meth A, 2010, 622(1): 83. https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900210016578. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.07.047.
[18] LUGENDO I J, AHN J K, KUMWENDA M J, et al. Applied Radiation and Isotopes, 2019, 150: 141. https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804318309278. DOI: https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.05.027.
[19] DROZDOWSKI W, DORENBOS P, BOS A J J, et al. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2008, 55(3): 1391 –1396. https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-45849133107&doi=10.1109%2fTNS.2007.908579&partnerID=40&md5=b32fe66e5f0649c43595284a6d1c1226. DOI: 10.1109/TNS.2007.908579.
[20] DANEVICH F A, KOBYCHEV V V, PONKRATENKO O A, et al. Nuclear Physics A, 2001, 694(1): 375. https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947401009836. DOI: https://doi.org/10.1016/S0375-9474(01)00983-6.
[21] DANEVICH F A, KOBYCHEV V V, NAGORNY S S, et al. Nucl Instr and Meth A, 2005, 541(3): 583. https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900205000069. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nima.2004.12.014.
[22] LEE J. Nuclear Physics Review, 2017, 34(3): 332. DOI: 10.11804/NuclPhysRev.34.03.332.
[23] SöDERSTRöM P A, AçıKSöZ E, BALABANSKI D L, et al. Nucl Instr and Meth A, 2022, 1027: 166171. https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900221010494. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nima.2021.166171.
[24] LI Tianxiao, WU Hongyi, ZHENG Yun, et al. Nuclear Physics Review, 2023, 40(1): 73. (in Chinese) DOI: 10.11804/NuclPhysRev.40.2022021
(李天晓, 吴鸿毅, 郑云, 等. 原子核物理评论, 2023, 40(1): 73.)
[25] [EB/OL]. https://www.hamamatsu.com/eu/en.html.
[26] WU Zhihua, ZHAO Guoqing, LU Fuquan, et al. Experimenttal Methods in Nuclear Physics[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1997. (in Chinese)
(吴治华, 赵国庆, 陆福全, 等. 原子核物理实验方法[M]. 北京: 原子能出版社, 1997.)
[27] LIN W J, ZHAO J W, SUN B H, et al. Chin Phys C, 2017, 41(6): 066001. DOI: 10.1088/1674-1137/41/6/066001.
[28] [EB/OL]. https://www.nndc.bnl.gov/nudat3.

Investigation on the properties of customized fast-timing $LaBr_3$(Ce) Detector

WEI Xiulin[1], YANG Zekai[1], ZHOU Xiaopeng[1], SUN Baohua[1]

(*1. School of Physics, Beihang University, Beijing 100191, China*)

Abstract: We have developed a $LaBr_3$(Ce) detector based on a customized $\phi 2'' \times 2''$ $LaBr_3$(Ce) crystal coupled with the Hamamatsu R13089 photomultiplier. We determined the energy resolution and intrinsic detection efficiency of our detector to be 3.6% and 17.6% for the 662 keV γ-ray, respectively. The time resolution of our detector was found to be 270 (22) ps using the cascade 1173-1332 keV γ-rays from ^{60}Co source. Furthermore, we evaluated the average activity of intrinsic radiation from our detector to be 4824 (69) Counts/h/cm^3. The performance of the Saint-Gobain B380 and B390 detectors are also presented in this paper for reference.

Key words: $LaBr_3$(Ce) detector; energy resolution; detection efficiency; time resolution; intrinsic radiation

Received date: 17 Nov. 2023; **Revised date:** 17 Nov. 2023

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (11922501);

Corresponding author: SUN Baohua, E-mail: bhsun@buaa.edu.cn